

**ПРИГОТОВЛЕНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ФАЗОВОГО СОСТАВА И КАТАЛИТИЧЕСКОЙ
АКТИВНОСТИ НАНЕСЕННЫХ CuO-MoO₃ КАТАЛИЗАТОРОВ**А.В. Нам, Е.В. Солтыс

Научный руководитель: к.х.н., Т.С. Харламова

Национальный исследовательский Томский государственный университет,

Россия, г. Томск, пр. Ленина, 36, 634050

E-mail: nv.a@inbox.ru**PREPARATION AND STUDY OF PHASE COMPOSITION AND CATALYTIC ACTIVITY OF
SUPPORTED CuO-MoO₃ CATALYSTS**A.V. Nam, E.V. Soltys

Scientific Supervisor: PhD T.S. Kharlamova

Tomsk State University, Russia, Tomsk, Lenin str., 36, 634050

E-mail: nv.a@inbox.ru

Abstract. Alumina-supported CuO-MoO₃ catalysts were prepared by the alumina consecutive impregnation with (NH₄)₆Mo₇O₂₄ and Cu(NO₃)₂ solutions. The effect of preparation approach as well as alumina support modification on phase composition of supported CuO-MoO₃/Al₂O₃ catalysts and their catalytic activity toward soot oxidation is discussed.

Введение. В настоящее время важной экологической проблемой является загрязнение атмосферного воздуха продуктами неполного сгорания топлива в автомобильных двигателях. Выхлопные газы автомобилей содержат токсичные вещества и канцерогены, в том числе CO, NO_x, SO₂, различные альдегиды и несгоревшие углеводороды, а также сажевые частицы в случае дизельных двигателей. Для снижения токсичности выхлопных газов в современных автомобилях используются различные каталитические нейтрализаторы, для удаления сажи – сажевые фильтры.

Сажевый фильтр представляет собой устройство, подобное обычному каталитическому нейтрализатору, но с закрытыми каналами и газопроницаемыми стенками. В сажевом фильтре развивается высокая температура, при которой частицы сажи способны окисляться остаточным кислородом выхлопных газов. Для снижения температуры горения сажи используют катализаторы, нанесенные на поверхность каналов фильтра. В качестве катализаторов используют системы на основе драгоценных металлов – Pt, Pd, Rh. Актуальной задачей является разработка альтернативных катализаторов на основе неблагородных металлов или оксидов. Недавно было показано, что массивные молибдаты меди обладают каталитической активностью в реакции окисления сажи [1,2]. Однако нанесенные катализаторы на их основе, представляющие наибольший интерес в практическом отношении, остаются малоизученными.

Целью данной работы являлось изучение особенностей формирования фазового состава нанесенных CuO-MoO₃/Al₂O₃ катализаторов и их реакционной способности в модельной реакции окисления сажи.

Экспериментальная часть. Образцы катализаторов, отличающиеся молярным соотношением Cu:Mo (1:1 и 3:2) и порядком введения наносимых компонентов, были синтезированы методом последовательной пропитки носителя по влагеёмкости (рис. 1).

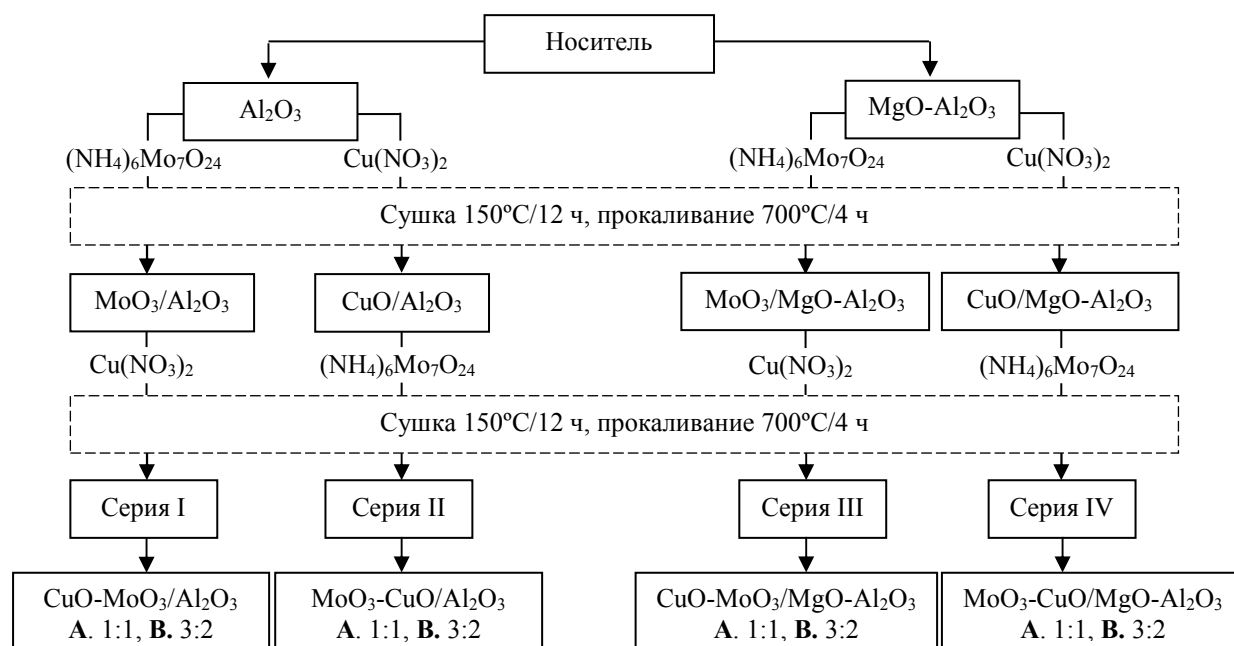


Рис. 1. Схема приготовления катализаторов

В качестве носителя использовали оксид алюминия, немодифицированный (Al_2O_3) и модифицированный оксидом магния ($\text{MgO-Al}_2\text{O}_3$); в качестве предшественников Mo и Cu – водные растворы $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}$, $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$, соответственно. Образцы после каждой стадии пропитки сушили при 150°C и прокаливали при 700°C . Полученные образцы были исследованы методами рентгенофазового анализа (РФА), температурно-программированного восстановления водородом (H_2 -ТПВ) и электронной спектроскопией диффузионного отражения (ЭСДО). Активность образцов в реакции окисления модельной сажи (Carbon Black, “Micromeritics”, США) изучали методом синхронного термического анализа (СТА).

Результаты. Согласно данным СТА, все нанесенные образцы снижают температуру горения сажи (рис. 2, рис. 3). Однако, в сравнении с массивными молибдатами меди, для которых горение сажи начинается уже при 410°C , каталитическая активность нанесенных образцов ниже. Согласно данным РФА, ЭСДО и H_2 -ТПВ, на формирование фазового состава нанесенных образцов и как следствие их каталитическую активность существенное влияние оказывает порядок введения наносимых компонентов и модифицирование носителя MgO. Для серии образцов I и II было выявлено взаимодействие носителя и MoO_3 или CuO с образованием на первой стадии пропитки на поверхности носителя молибдатов алюминия и твердого раствора CuO в оксиде алюминия или алюмината меди, соответственно. Взаимодействие MoO_3 с носителем препятствует в последующем формированию активной поверхности нанесенных $\text{CuO-MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ катализаторов.

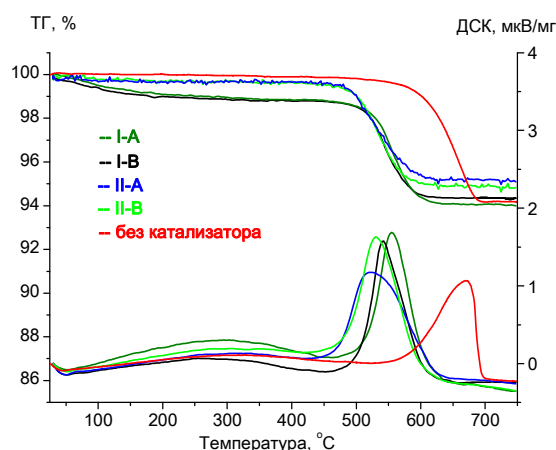


Рис. 2. Данные СТА катализаторов серий I и II

Модифицирование носителя MgO с целью предотвратить взаимодействие Al_2O_3 с наносимыми компонентами, позволяет получить нанесенные молибдаты меди, однако снижает каталитическую активность образцов в реакции окисления сажи, особенно в случае образцов серии III.

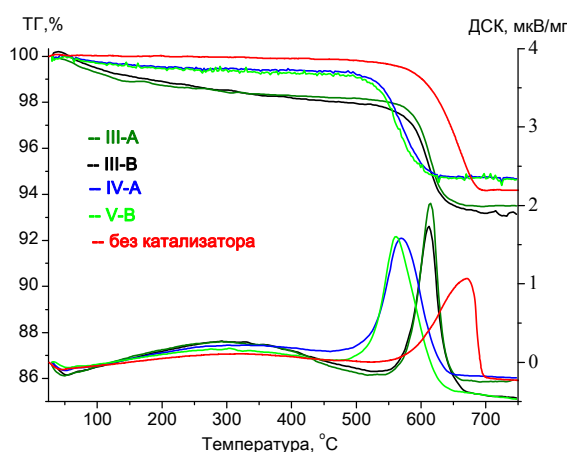


Рис. 3. Данные СТА катализаторов серий III и IV

Заключение. Исследованы особенности формирования фазового состава нанесенных $\text{CuO-MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ катализаторов, а также их реакционная способность в модельной реакции окисления сажи. Выявлено, что последовательность введения наносимых компонентов и модифицирование носителя оксидом магния оказывает существенное влияние на фазовый состав и активность нанесенных катализаторов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Chu W. G. et al. Catalyst-free growth of quasi-aligned nanorods of single crystal $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$ and their catalytic properties //Inorganic chemistry. – 2009. – Т. 48. – V. 3. – С. 1243–1249.
2. Chigrin P. G., Lebukhova N. V., Ustinov A. Y. Structural transformations of CuMoO_4 in the catalytic oxidation of carbon //Kinetics and Catalysis. – 2013. – Т. 54. – V. 1. – С. 76–80.